

日本国特許庁 JAPAN PATENT OFFICE

17:11.03

RECEIVED

0 9 JAN 2004

PCT

WIPO

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 Date of Application:

2002年11月18日

出願番号 Application Number:

特願2002-333988

[ST. 10/C]:

[JP2002-333988]

出 願 人 Applicant(s):

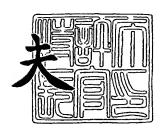
シービーエムエムアジア株式会社

PRIORITY DOCUMENT

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

特許庁長官 Commissioner, Japan Patent Office 2003年12月18日

今井康





【書類名】

特許願

【整理番号】

CBM0002

【提出日】

平成14年11月18日

【あて先】

特許庁長官 太田 信一郎 殿

【発明者】

【住所又は居所】

東京都港区赤坂4丁目1番地4号 赤坂中西ビル別館1

階 シービーエムエムアジア株式会社内

【氏名】

今葷倍 正名

【特許出願人】

【識別番号】 502169054

【氏名又は名称】 シービーエムエムアジア株式会社

【代理人】

【識別番号】

100107892

【弁理士】

【氏名又は名称】 内藤 俊太

【選任した代理人】

【識別番号】

100105441

【弁理士】

【氏名又は名称】 田中 久喬

【手数料の表示】

【予納台帳番号】

089005

【納付金額】

21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】

明細書 1

【物件名】

要約書 1

【プルーフの要否】

要



【書類名】 明細書

【発明の名称】 電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末及びその製造方法、並び に電解コンデンサ

【特許請求の範囲】

【請求項1】 表面に誘電体層を形成することで電解コンデンサの陽極体として用いられるNb-Al 合金粉末であって、 $NbAl_3$ からなる微細デンドライト組織と、該デンドライト組織を取り囲む、 Nb_2Al と $NbAl_3$ との共晶状組織、Val (Val (Val) とVal (V

【請求項2】 前記Nb-Al合金のアルミニウム含有量が、27質量%以上97質量%以下であることを特徴とする請求項1に記載の電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末。

【請求項3】 前記Nb-Al合金にタンタル、チタン、ハフニウム、ジルコニウム、モリブデン、バリウム、ストロンチウム、ボロンから選ばれる1種以上の元素が添加されたことを特徴とする請求項1又は2に記載の電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末。

【請求項4】 前記添加元素の含有量が、3質量%以下であることを特徴とする請求項3に記載の電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末。

【請求項5】 前記Nb-Al合金に不純物として含まれる鉄の含有量が、 100質量ppm以下であることを特徴とする請求項1ないし4のいずれか1項 に記載の電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末。

【請求項6】 前記 $N b A 1_3$ からなる微細デンドライト組織の樹枝間隔が $3 \mu m$ 以下であることを特徴とする請求項1ないし5のいずれか1項に記載の電解コンデンサ用N b - A 1合金粉末。

【請求項7】 表面に誘電体層を形成することで電解コンデンサの陽極体として用いられるNb-Al合金粉末の製造方法であって、

アルミニウム含有量が27質量%以上97質量%以下のNb-Al溶融金属を 急冷して、内部に樹枝間隔が3μm以下の微細デンドライト組織を有するNb-Al合金の粉体又は薄帯を作製することを特徴とする電解コンデンサ用Nb-A



1 合金粉末の製造方法。

【請求項8】 前記溶融金属の急冷によりNb-Al合金の粉体又は薄帯を作製する工程における冷却速度を、10³℃/秒以上とすることを特徴とする請求項7に記載の電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末の製造方法。

【請求項9】 前記薄帯を粉砕して粉末化する工程を具備することを特徴とする請求項7又は8に記載の電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末の製造方法。

【請求項1.0】 請求項1ないし6のいずれかに記載のNb-Al合金粉末を焼結してなる陽極体を備えたことを特徴とする電解コンデンサ。

【請求項11】 請求項7ないし9のいずれかに記載のNb-Al合金粉末の製造方法によって製造したNb-Al合金粉末を、さらに焼結して電解コンデンサの陽極体とすることを特徴とする電解コンデンサの製造方法。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】

本発明は、電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末及びその製造法、並びに係る Nb-Al合金粉末を用いた電解コンデンサに関するものである。

[0002]

【従来の技術】

近年、電子機器等に搭載されるコンデンサにおいては、小型で大容量のものが 求められており、この種の電解コンデンサとしては、その陽極体にタンタル粉末 の焼結体を用いたものが比較的小型で容量が大きく、コンデンサ性能にも優れる ため好んで使用されている。しかし、上記タンタルコンデンサでは、コンデンサ 容量を大きくしようとすると必然的にコンデンサのサイズが大きくなり、小型の 要求を満たすことができない。また、タンタル自体が高価な金属であり、コンデ ンサの低価格化が困難であるという問題点がある。

[0003]

そこで、電解コンデンサの小型大容量化を実現するために、酸化物の誘電率がより大きな金属を用いてコンデンサを作製する研究が成されており、そのうちでもタンタルに比して価格が安く、酸化物の誘電率が比較的高いニオブを電解コン



デンサの陽極体に適用する試みが盛んに行われている(例えば特許文献 1 等)。 また、ニオブを含む陽極体の構成材料として、アルミニウムとニオブ(あるいは チタン、タンタル、ジルコニウム等の弁金属)との合金を用いることが、以下の (特許文献 2) に提案されている。しかしながら、上記の文献に記載の構成を備 えた陽極体を用いた電解コンデンサでは、主としてアルミニウム酸化物からなる 誘電体層の誘電率が小さく従って高い容量のコンデンサには適していないという 問題点があり、実用化する上での障害となっていた。

[0004]

【特許文献1】

特開昭55-157226号公報

【特許文献2】

特開平1-124212号公報

[0005]

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、上記従来技術の問題点に鑑みて成されたものであって、誘電体層の誘電率を高い酸化物とするためにNbの濃度を高め、加えて、Nb-Alを基本成分とし第三の元素を単独または複数添加することによってコンデンサ容量が大きく、耐圧の高い電解コンデンサを構成することができる電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末を提供することを目的としている。

[0006]

また本発明は、上記電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末の製造法を提供するを目的としている。

[0007]

また本発明は、上記電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末を用いた電解コンデンサを提供することを目的としている。

[0008]

【課題を解決するための手段】

上記課題を解決するために、本発明は以下の構成を採用した。

[0009]



本発明の電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末は、表面に誘電体層を形成することで電解コンデンサの陽極体として用いられるNb-Al合金粉末であって、NbAl3からなる微細デンドライト組織と、該デンドライト組織を取り囲む、Nb2AlとNbAl3との共晶状組織、又はAlのマトリクスとを有することを特徴としている。

[0010]

上記構成を備えた本発明のNb-Al合金粉末によれば、表面に形成される誘電体層が、ニオブ酸化物とアルミニウム酸化物とを含むものとなり、高い誘電率を有すると共に、ニオブ酸化物単体の誘電体層よりも安定であり、漏れ電流も小さくすることができる。

[0011]

また、本発明のNb-Al合金粉末は、上記のマトリクス部分のみを部分的又は全体的に除去することで、微細デンドライト組織を主要部とする多孔質粉末を容易に作製可能であるという利点を有しており、このような多孔質粉末を電解コンデンサの陽極体に適用することで、表面積が広く、かつ誘電体層の耐圧が高い、高性能の電解コンデンサを構成することができる。

[0012]

次に、本発明の電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末は、前記Nb-Al合金のアルミニウム含有量が、27質量%以上97質量%以下である構成とすることが好ましい。

[0013]

前記アルミニウム含有量を前記範囲とすることで、 $NbA1_3$ を主体とするデンドライト組織を有するNb-A1合金粉末が得られる。前記アルミニウム含有量が27質量%未満の場合には、上記微細デンドライト組織が、 Nb_2A1 を主体とする組織となり、また、マトリクスが Nb_2A1 と $NbA1_3$ の共晶状になるため、エッチングにより選択的にマトリクスを除去するのが困難になる。

[0014]

また、本発明の電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末において、前記Nb-Al合金のアルミニウム含有量を、46質量%以上97質量%以下とするならば、



前記マトリクスがAlからなる合金粉末が得られる。かかる合金粉末によれば、Alマトリックスをエッチングにより容易に除去することができるため、多孔質粉末を作製した際に、さらに表面積の大きいコンデンサ用合金粉末が得られる。

[0015]

本発明の電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末においては、密度が $2.8g/cm^3$ 以上 $8.4g/cm^3$ 以下とされることが好ましい。

[0016]

本発明の電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末においては、比表面積が、 $1\sim 10\,\mathrm{m}^2/\mathrm{g}$ とされた構成とすることが好ましい。

[0017]

次に、本発明の電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末は、前記Nb-Al合金にタンタル、チタン、ハフニウム、ジルコニウム、モリブデン、バリウム、ストロンチウム、ボロンから選ばれる1種以上の元素が添加された構成とすることもできる。

[0018]

上記に挙げた元素をNb-Al合金に添加することで、電解コンデンサを構成した際に表面に形成される誘電体層の非誘電率を著しく向上させる効果が得られる。

[0019]

また、前記添加元素の含有量は、3質量%以下であることが好ましい。3質量%を越える添加量とすると耐圧の高い条件下で漏れ電流が増大を招き上記効果を得られない。

[0020]

次に、本発明の電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末は、前記Nb-Al合金に不純物として含まれる鉄の含有量が、100ppm以下である構成とすることが好ましい。

[0021]

上記の不純物含有量が100ppmを越えると、電解コンデンサの陽極体を構成した際に表面に形成される誘電体層の耐圧が低下するため好ましくない。

6/



[0022]

次に、本発明の電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末は、前記 $NbAl_3$ からなる微細デンドライト組織の樹枝間隔が 3μ m以下である構成とすることが好ましい。このような構成とすることで、エッチングによりマトリクスを除去して多孔質粉末を作製した場合に粉末の表面積をより拡大することができ、大容量の電解コンデンサを作製することができる。

[0023]

次に、本発明の電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末の製造方法は、表面に誘電体層を形成することで電解コンデンサの陽極体として用いられるNb-Al合金粉末の製造方法であって、アルミニウム含有量が27質量%以上97質量%以下のNb-Al溶融金属を急冷して、内部に樹枝間隔が3μm以下の微細デンドライト組織を有するNb-Al合金の粉体又は薄帯を作製することを特徴とする

[0024]

上記製造方法によれば、エッチングを施すことにより容易に表面積を拡大することができ、前記Alマトリクスの部分が優先的にエッチングされ、前記デンドライト組織が残った多孔質部が形成される。このようにして作製したNb-Al合金粉末は、微細な粒子で表面積が広く、また、表面に酸化物の誘電体層を形成した場合に高い誘電率が得られるので、電解コンデンサの小型大容量化を実現することができる。

[0025]

次に、本発明の電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末の製造方法においては、前記溶融金属の急冷によりNb-Al合金の粉体又は薄帯を作製する工程における冷却速度を、 10^3 C/秒以上とすることが好ましい。冷却速度を上記範囲とすることで、上記粉体又は薄帯中に微細なデンドライト組織を効率よく形成することができ、製造されるNb-Al合金粉末の表面積を大きくすることができる。また、前記冷却速度は、より好ましくは 10^4 C/秒以上である。

[0026]

次に、本発明の電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末の製造方法電解コンデン



サ用Nb-Al合金粉末は、前記粉体又は薄帯を粉砕して粉末化する工程を具備することもできる。

[0027]

次に、本発明の電解コンデンサは、先に記載の本発明の電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末を焼結した陽極体を備えたことを特徴としている。このような構成とすることで、小型大容量の電解コンデンサを提供することができる。またこのような電解コンデンサは、先に記載の本発明のNb-Al合金粉末の製造方法によって製造したNb-Al合金粉末を、さらに焼結して電解コンデンサの陽極体とすることによって製造することができる。

[0028]

【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施の形態について説明する。

[0029]

本発明に係る電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末は、NbAl3を主体とする微細デンドライト組織と、この微細デンドライト組織を取り囲むNb2Al又はAlからなるマトリクスとを有する点に特徴を有している。この構成により、電解コンデンサの陽極体として用いた際に、粒子表面に形成される誘電体層を構成する酸化物が、ニオブ酸化物とアルミニウム酸化物とを含むものとなり、アルミニウムコンデンサに比して高い誘電率を有すると共に、ニオブ酸化物単体の誘電体層よりも格段に安定性に優れるものとなる。従って、本発明のNb-Al合金粉末を電解コンデンサに適用するならば、小型で大容量の電解コンデンサを実現することができる。

[0030]

また、現在電解コンデンサとして一般に用いられているTaに比してNbは安価であるため、Taコンデンサと同等の性能を有する電解コンデンサを安価に製造できるという利点もある。

[0031]

次に、本発明に係る電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末の製造方法の一例について以下に説明する。



[0032]

(1) 本発明に係るNb-Al 合金粉末を作製するには、まず、所定の組成を有するNb-Al の溶融金属を用意する。その際、アルミニウム含有量は46 質量%以上とする。

[0033]

(2) 次に、上記溶融金属が用意できたならば、ガスアトマイズ法やRSR法 (回転電極法) 等により前記溶融金属を急冷凝固して粉体とする。本発明に係る 製造方法では、上記いずれの方法を用いる場合にも、冷却速度が 10^3 C/秒以上 (より好ましくは 10^4 C/秒以上) となるように製造条件を設定することが 好ましい。

[0034]

以上の工程により、NbAl3を主体とした微細デンドライト組織と、このデンドライト組織を取り囲むマトリクスとからなる本発明の電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末を製造することができる。

[0035]

さらに、本発明に係る電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末は、エッチングを施すことによって粉末の表面積を拡大し、コンデンサの容量を増大させることができる。具体的には、NbAl3を主体とする微細デンドライト組織を取り囲むマトリクスをエッチングにより部分的、又は全体的に取り除くことで、上記デンドライト組織を骨格とする多孔質の粉末が得られる。

[0036]

例えば、合金粉末のマトリクスがA1である場合には、エッチングは極めて容易であり、塩酸や硝酸等を含む一般に用いられているエッチング液により選択的にA1マトリクスを除去し、微細デンドライト組織を骨格とする多孔質粉末を形成することができる。また、NbA13を主体とする微細デンドライト組織とNbA13とNb2A1の共晶状部分が共存する場合には、フッ硝酸等によりNbA13部分をエッチングすることで粉末の表面積を拡大することができ、大容量の電解コンデンサを構成し得る合金粉末とすることができる。

[0037]



【実施例】

以下に本発明の実施例を説明する。

[0038]

表1に示す [実施例1] はA1 濃度が質量%で27%以上46%未満の例である。この範囲の組成の急冷アトマイズ粉は初晶であるNb A13のデンドライト相とNb A13とNb 2A1との共晶状の組織からなる混合組織であり,フッ酸と硝酸の混合酸液によってエッチングするとNb A13相がエッチングされ表面積の著しい拡大がもたらされる。この粉末を焼結し化成処理を施すとタンタ粉末を凌ぐ大きなCV値とタンタル粉末よりも高い耐圧の素子となる。

[0039]

【表1】

武料番号	組成	粉体の作成プロス	粒径: d ₅₀ µm	焼結素子 嵩比重 gr/cm ³	化成 電圧 Vf	CV 値 μFV/g	漏洩 電流 μA
1	Nb-35%A1	か スプトマイズ 後 エッチング	35	3.5	120	16,000	<0.5
2	Nb-10%Ta-35%Al	RSR 法	1.5	3.8	120	33,000	<0.5
3	Nb-3%Zr-35%Al	RSR 法後に 粉砕しエッチン グ	1.5	3.2	120	28,000	<0.5
4.	Nb-35%Al	が スプトマイズ 後 エッチング	55	3.4	240	13,000	<0.5
5	Nb-10%Ta-35%Al	ガスアトマイズ後 エッチング	50	3.9	240	12,000	<0.5
6	Nb-3%Zr-35%Al	RSR 法後に 粉砕しエッチン グ	1.2	3.6	240	25,000	<0.5
7	Nb-10%Ta-30%Al	RSR 法後	1.3	4.2	240	32,000	<0.5
8	Nb-10%Ta- 30%Al-5%Ba	RSR 法後に 粉砕しエッチン グ	1.3	3.9	480	20,000	<0.1
9	Nb-10%Ta-30%Al -3%Sr	RSR 法後に 粉砕しIッチン グ	1.2	3.9	400	16,000	<0.1

[0040]



[0041]

【表2】

試料 番号	組成	粉体の作成プロ	粒径:	焼結素子嵩	化成電	CV値	漏洩
田写		セス	d ₅₀ μm	比重。	圧	μFV/g	電流
 				gr/cm ³	Vf		μ A
1	Nb-20%Al.	REP 法後に粉 砕しエッチング	1.2	3.6	120	35,000	<0.5
2	Nb-3%Ta- 20%Al	ガスアトマイズ後粉 砕しエッチング	1.7	3.8	120	47,000	<0.5
3	Nb-20%A1	RSR 法後粉砕 しエッチング	1.5	3.7	120	38,000	<0.5
4	Nb-3%Zr- 20%Al	が スアトマイズ後粉 砕しエッチング	5.5	3.1	120	22,000	<0.5
5	Nb-20%Al -5%Ba	REP 法後に粉 砕しエッチング	1.2	3.6	240	40,000	<0.5

[0042]

表3に示す [実施例3] はA1 濃度が質量%で10%以上14%未満の例である。この範囲の組成の急冷アトマイズ粉は初晶であるNb $_3$ A1のデンドライト相とNb $_3$ A1とNb $_2$ A1との共晶状の組織からなる混合組織であり,水素吸蔵処理をして粉砕すると微細な粉体とすることができ表面積の著しく大きな焼結素子を得ることができる。この焼結素子は化成処理を施すとタンタル粉末を凌ぐ大きなCV値とタンタル粉末よりも高い耐圧の素子となる。

[0043]



【表3】

試料 番号	組成	粉体の作成プロ tx	粒径: d ₅₀ μm	焼結素子嵩 比重 gr/cm ³	化成電 圧 Vf	CV 値 µFV/g	漏洩 電流 μA
1	Nb-12%Al	RSR 法後に粉 砕しエッチング	1.3	3.6	24	145,000	<0.5
2	Nb-12%Al	ガスプトマイズ後粉砕しエッチング	1.6	3.8	80	51,000	<0.5
3	Nb-12%Al	RSR 法後粉砕 しIッチング	1.6	3.7	120	29,000	<0.5
4	Nb-5%Ta- 12%Al	が スアトマイズ後粉 砕しエッチング	5.2	3.1	120	35,000	<0.5
5	Nb-12%Al -5%Ba	RSR 法後に粉 砕しエッチング	1.1	3.6	240	24,000	<0.5

[0044]

表4に示す [実施例4] はA1濃度が質量%で10%未満の例である.この範囲の組成の急冷アトマイズ粉は初晶であるNbのデンドライト相とNb3A1とNbとの共晶状の組織からなる混合組織であり、水素吸蔵処理をして粉砕すると微細な粉体とすることができ表面積の著しく大きな焼結素子を得ることができる.この焼結素子は化成処理を施すとタンタル粉末を凌ぐ大きなCV値とタンタル粉末よりも高い耐圧の素子となる.

[0045]



【表4】

試料 番号	組成	粉体の作成プロセス	粒径: d ₅₀ μm	焼結素子嵩 比重 gr/cm ³	化成電 圧 Vf	CV 値 µFV/g	漏洩 電流 μA
1	Nb-7%Al	RSR 法後に粉 砕しエッチング	1.1	3.6	80	75,000	<0.5
2	Nb-7%Al	が スアトマイズ後粉 砕しエッチング	1.4	3.8	80	65,000	<0.5
3	Nb-7%Al	RSR 法後粉砕 しIッチング	1.5	3.7	120	309,000	<0.5
4	Nb-5%Ta- 12%Al	がスアトマイズ、後粉砕しエッチング	5.2	4.1	120	35,000	<0.5
5	Nb-12%Al -5%Ba	RSR 法後に粉 砕しエッチング	1.1	3.6	240	24,000	<0.5

[0046]

【発明の効果】

以上詳細に説明したように、本発明の電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末は、表面に誘電体層を形成することで電解コンデンサの陽極体として用いられるNb-Al合金粉末であって、NbAl3からなる微細デンドライト組織と、該デンドライト組織を取り囲む、Nb2AlとNbAl3との共晶状組織、又はAlのマトリクスとを有する構成とされたことで、表面に形成される誘電体層が、ニオブ酸化物とアルミニウム酸化物とを含むものとなり、高い誘電率を有すると共に、ニオブ酸化物単体の誘電体層よりも安定であり、漏れ電流も小さくすることができる。

[0047]

また、本発明に係るNb-Al合金粉末をエッチングして上記マトリクスを部分的に除去するならば、極めて微細なデンドライト組織を骨格とする多孔質粉末を作製することができるため、表面積を大幅に拡大し、コンデンサ容量を向上させることができる。



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 コンデンサ容量が大きく、耐圧の高い電解コンデンサを構成することができる電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末、及びその製造法を提供する。

【解決手段】 表面に誘電体層を形成することで電解コンデンサの陽極体として用いられるNb-Al合金粉末であって、NbAl3からなる微細デンドライト組織と、該デンドライト組織を取り囲む、Nb2AlとNbAl3との共晶状組織、又はAlのマトリクスとを有する構成とした。また、アルミニウム含有量が27質量%以上97質量%以下のNb-Al溶融金属を急冷して、内部に樹枝間隔が3μm以下の微細デンドライト組織を有するNb-Al合金の粉体又は薄帯を作製することを特徴とする電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末の製造方法である。

【選択図】 なし



特願2002-333988

出願人履歴情報

識別番号

[502169054]

1. 変更年月日 [変更理由]

2002年 5月13日

新規登録

住 所 名

東京都港区赤坂4丁目1番地4号 赤坂中西ビル別館1階

シービーエムエムアジア株式会社